

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/001502

International filing date: 02 February 2005 (02.02.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-341576
Filing date: 26 November 2004 (26.11.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 31 March 2005 (31.03.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

04. 2. 2005

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 4 年 1 1 月 2 6 日
Date of Application:

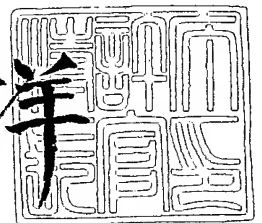
出 願 番 号 特 願 2 0 0 4 - 3 4 1 5 7 6
Application Number:
[ST. 10/C] : [J P 2 0 0 4 - 3 4 1 5 7 6]

出 願 人 三 菱 鉛 筆 株 式 会 社
Applicant(s):

2 0 0 5 年 3 月 1 8 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川 洋



【書類名】 特許願
【整理番号】 EP0421
【提出日】 平成16年11月26日
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 H01M 8/02
H01M 8/24
【発明者】
【住所又は居所】 群馬県藤岡市立石 1 0 9 1 番地 三菱鉛筆株式会社 群馬工場内
【氏名】 神谷 俊史
【特許出願人】
【識別番号】 000005957
【氏名又は名称】 三菱鉛筆株式会社
【代理人】
【識別番号】 100112335
【弁理士】
【氏名又は名称】 藤本 英介
【選任した代理人】
【識別番号】 100101144
【弁理士】
【氏名又は名称】 神田 正義
【選任した代理人】
【識別番号】 100101694
【弁理士】
【氏名又は名称】 宮尾 明茂
【手数料の表示】
【予納台帳番号】 077828
【納付金額】 16,000円
【提出物件の目録】
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 明細書 1
【物件名】 図面 1
【物件名】 要約書 1
【包括委任状番号】 9907257

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

燃料電極体の外表部に電解質層を構築し、該電解質層の外表部に空気電極層を構築することで形成される単位セルが複数連結されると共に、該各単位セルには液体燃料を貯蔵する燃料貯蔵槽に接続される浸透構造を有する燃料供給体又は燃料電極体が連結されて液体燃料が供給され、燃料供給体の終端は、使用済み燃料貯蔵槽に接続される燃料電池であって、前記使用済み燃料貯蔵槽と前記燃料貯蔵槽とが接続され、使用済み燃料が前記燃料貯蔵槽に供給されて液体燃料として再利用できる構成としてなることを特徴とする燃料電池。

【請求項 2】

前記燃料貯蔵槽に、液体燃料の濃度センサを備えていることを特徴とする請求項 1 に記載の燃料電池。

【請求項 3】

前記使用済み燃料貯蔵槽と前記燃料貯蔵槽との接続部に中継芯を配置したことを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の燃料電池。

【請求項 4】

前記使用済み燃料貯蔵槽と前記燃料貯蔵槽との接続部に中継芯を配置し、更に、コレクタ体を備えたことを特徴とする請求項 1～3 の何れか一つに記載の燃料電池。

【請求項 5】

前記コレクタ体が射出成形又は光造形技術により製造されている、または、前記コレクタ体が枚葉体により構成されていることを特徴とする請求項 1～4 の何れか一つに記載の燃料電池。

【請求項 6】

前記コレクタ体表面が前記使用済み液体燃料よりも表面自由エネルギーが高く調整されていることを特徴とする請求項 1～5 の何れか一つに記載の燃料電池。

【請求項 7】

前記使用済み燃料貯蔵槽及び／又は前記燃料貯蔵槽、あるいは、前記使用済み燃料貯蔵槽と前記燃料貯蔵槽との接続部が、取り外し可能であることを特徴とする請求項 1～6 の何れか一つに記載の燃料電池。

【請求項 8】

前記使用済み燃料貯蔵槽及び／又は前記燃料貯蔵槽、あるいは、前記使用済み燃料貯蔵槽と前記燃料貯蔵槽との接続部に、開閉可能な蓋体を設けたことを特徴とする請求項 1～7 の何れか一つに記載の燃料電池。

【請求項 9】

液体燃料がメタノール液、ジメチルエーテル（DME）、ギ酸、ヒドラジン、アンモニア液、エチレングリコール、水素化ホウ素ナトリウム水溶液から選ばれる少なくとも 1 種である請求項 1～8 の何れか一つに記載の燃料電池。

【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池

【技術分野】

【0001】

本発明は、携帯電話、ノート型パソコン、デジタルカメラ、PDA及び電子手帳などの携帯用電子機器の電源として用いられるのに好適な小型の燃料電池に関する。

【背景技術】

【0002】

従来より、一般に、燃料電池は、空気電極層、電解質層及び燃料電極層が積層された燃料電池セルと、燃料電極層に還元剤としての燃料を供給するための燃料供給部と、空気電極層に酸化剤としての空気を供給するための空気供給部とからなり、燃料と空気中の酸素とによって燃料電池セル内で電気化学反応を生じさせ、外部に電力を得るようにした電池であり種々の形式のものが開発されている。

【0003】

近年、環境問題や省エネルギーに対する意識の高まりにより、クリーンなエネルギー源としての燃料電池を、各種用途に用いることが検討されており、特に、メタノールと水を含む液体燃料を直接供給するだけで発電できる直接メタノール型燃料電池（例えば、特許文献1及び2参照）が注目されてきている。

これらの中でも、液体燃料の供給に毛管力を利用した液体燃料電池が知られている（例えば、特許文献3～7参照）。

これらの液体燃料電池は、燃料タンクから液体燃料を毛管力で燃料極に供給するため、液体燃料を圧送するためのポンプを必要としないなど小型化に際してメリットがある。

【0004】

しかしながら、このような単に燃料貯蔵槽に設けられた、多孔体及び／又は繊維束体の毛管力だけを利用した液体燃料電池は、構成上は小型化に適するものの、燃料極に燃料が直接液体状態で供給されるため小型携帯機器に搭載し電池部の前後左右や上下が絶えず変わる使用環境下では、長時間の使用期間中に燃料の追従が不完全となり、燃料供給遮断などの弊害が発生し、電解質層への燃料供給を一定にすることを阻害する原因となっている。

【0005】

これら欠点の解決策の一つとして、例えば、液体燃料を毛管力によりセル内に導入した後、液体燃料を燃料気化層にて気化して、使用する燃料電池システム（例えば、特許文献8参照）が知られているが、基本的な問題点である燃料の追従性不足は改善されていないという課題を有し、また、この構造の燃料電池は液体を気化させた後に燃料として用いるシステムのため、小型化が困難となるなどの課題がある。

【0006】

更に、一回使用した液体燃料を元の燃料タンクに戻し、未使用の液体燃料を押し出すことに供する構造（例えば、特許文献9～11参照）に知られているが、戻した液体燃料を直ちに再利用する構造とはなっていないのが現状である。

【0007】

このような従来の燃料電池では、燃料極に直接液体燃料を供給する際に燃料の供給が不安定で動作中の出力値に変動が生じたり、安定な特性を維持したまま携帯機器への搭載が可能な程度の小型化は困難であるのが現状である。

更に、これら特許文献9～11には、使用済み燃料の貯蔵あるいは処理については開示がなされているものの、使用済み燃料の再利用などについては明確に開示されていない。更にまた、液体燃料を再利用する場合には、利用の度に燃料濃度が希薄になり、液体燃料として利用できる最低濃度が使用者に分からないという課題もある。

【特許文献1】特開平5-258760号公報（特許請求の範囲、実施例等）

【特許文献2】特開平5-307970号公報（特許請求の範囲、実施例等）

【特許文献3】特開昭59-66066号公報（特許請求の範囲、実施例等）

- 【特許文献4】特開平6-188008号公報（特許請求の範囲、実施例等）
【特許文献5】特開2003-229158号公報（特許請求の範囲、実施例等）
【特許文献6】特開2003-299946号公報（特許請求の範囲、実施例等）
【特許文献7】特開2003-340273号公報（特許請求の範囲、実施例等）
【特許文献8】特開2001-102069号公報（特許請求の範囲、実施例等）
【特許文献9】特開2003-92128号公報（特許請求の範囲、実施例等）
【特許文献10】特開2004-127905号公報（特許請求の範囲、実施例等）
【特許文献11】特開2004-199966号公報（特許請求の範囲、実施例等）

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

本発明は、上記従来の直接メタノール型燃料電池における課題及び現状に鑑み、これを解消するためになされたものであり、燃料極に直接液体燃料を安定的に供給し、簡便に使用済み燃料の再利用を可能にし、燃料の使い終わりが使用者に容易に分かることができると共に、燃料電池の小型化をなし得ることができる燃料電池を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0009】

本発明者らは、上記従来の課題等について、鋭意検討した結果、微小炭素多孔体よりなる燃料電極体の外表部に電解質層を構築し、この電解質層の外表部に空気電極層を構築することで形成される単位セルが複数連結される燃料電池において、各単位セルへの燃料供給に燃料貯蔵槽より直接接続される燃料供給体に連結し、特定構造の使用済み燃料貯蔵槽が燃料供給体の終端に接続することなどにより、上記目的の燃料電池が得られることに成功し、本発明を完成するに至ったものである。

【0010】

すなわち、本発明は、次の（１）～（９）に存する。

（１） 燃料電極体の外表部に電解質層を構築し、該電解質層の外表部に空気電極層を構築することで形成される単位セルが複数連結されると共に、該各単位セルには液体燃料を貯蔵する燃料貯蔵槽に接続される浸透構造を有する燃料供給体又は燃料電極体が連結されて液体燃料が供給され、燃料供給体の終端は、使用済み燃料貯蔵槽に接続される燃料電池であって、前記使用済み燃料貯蔵槽と前記燃料貯蔵槽とが接続され、使用済み燃料が前記燃料貯蔵槽に供給されて液体燃料として再使用できる構成としてなることを特徴とする燃料電池。

（２） 前記燃料貯蔵槽に、液体燃料の濃度センサを備えていることを特徴とする上記（１）に記載の燃料電池。

（３） 前記使用済み燃料貯蔵槽と前記燃料貯蔵槽との接続部に中継芯を配置したことを特徴とする上記（１）又は（２）に記載の燃料電池。

（４） 前記使用済み燃料貯蔵槽と前記燃料貯蔵槽との接続部に中継芯を配置し、更に、コレクタ体を備えたことを特徴とする上記（１）～（３）の何れか一つに記載の燃料電池。

（５） 前記コレクタ体が射出成形又は光造形技術により製造されている、または、前記コレクタ体が枚葉体により構成されていることを特徴とする上記（１）～（４）の何れか一つに記載の燃料電池。

（６） 前記コレクタ体表面が前記使用済み液体燃料よりも表面自由エネルギーが高く調整されていることを特徴とする上記（１）～（５）の何れか一つに記載の燃料電池。

（７） 前記使用済み燃料貯蔵槽及び／又は前記燃料貯蔵槽、あるいは、前記使用済み燃料貯蔵槽と前記燃料貯蔵槽との接続部が、取り外し可能であることを特徴とする上記（１）～（６）の何れか一つに記載の燃料電池。

（８） 前記使用済み燃料貯蔵槽及び／又は前記燃料貯蔵槽、あるいは、前記使用済み燃料貯蔵槽と前記燃料貯蔵槽との接続部に、開閉可能な蓋体を設けたことを特徴とする上記

(1) ~ (7) の何れか一つに記載の燃料電池。

(9) 液体燃料がメタノール液、ジメチルエーテル (DME)、ギ酸、ヒドラジン、アンモニア液、エチレングリコール、水素化ホウ素ナトリウム水溶液から選ばれる少なくとも 1 種である上記 (1) ~ (8) の何れか一つに記載の燃料電池。

【発明の効果】

【0011】

本発明によれば、燃料極に直接液体燃料を安定的に供給し、簡便に使用済み燃料の再利用を可能にし、燃料電池の小型化をなし得ることができる燃料電池が提供される。

請求項 2 記載の発明によれば、更に、燃料の使い終わりが使用者に容易に分かることができる燃料電池が提供される。

請求項 3 ~ 9 記載の発明によれば、燃料極に直接液体燃料を更に安定的に供給し、簡便に使用済み燃料の再利用を可能とすると共に、更に使用性に優れた燃料電池が提供される。

【発明を実施するための最良の形態】

【0012】

以下に、本発明の実施形態を図面を参照しながら詳しく説明する。

図 1 は、本発明の基本的な実施形態を示す直接メタノール型燃料電池（以下、単に「燃料電池」という）A の基本形態を示すものである。

この燃料電池 A は、図 1 に示すように、液体燃料を収容する燃料貯蔵槽 10 と、微小炭素多孔体よりなる燃料電極体の外表部に電解質層を構築し、該電解質層の外表部に空気電極層を構築することで形成される単位セル（燃料電池セル）20、20 と、上記燃料貯蔵槽 10 に接続される浸透構造を有する燃料供給体 30 と、該燃料供給体 30 の終端に設けられる使用済み燃料貯蔵槽 40 とを備え、上記各単位セル 20、20 は直列に連結されて燃料供給体 30 により燃料が順次供給される構造となっている。更に使用済み燃料貯蔵槽 40 から燃料貯蔵槽 10 への燃料再供給路 60 が備えられている。

【0013】

上記燃料貯蔵槽が 10 に収容される液体燃料としては、メタノールと水とからなるメタノール液が挙げられるが、後述する燃料電極体において燃料として供給された化合物から効率良く水素イオン (H^+) と電子 (e^-) が得られるものであれば、液体燃料は特に限定されず、燃料電極体の構造などにもよるが、例えば、ジメチルエーテル (DME)、エタノール液、ギ酸、ヒドラジン、アンモニア液、エチレングリコール、水素化ホウ素ナトリウム水溶液などの液体燃料も用いることができる。また、メタノール液等の液体燃料の濃度は、燃料電池の構造、特性等により種々の濃度の液体燃料を用いることができ、例えば、1 ~ 100 % 濃度の液体燃料を用いることができる。

本実施形態では、メタノール液からなる液体燃料は、燃料貯蔵槽 10 内に収容される中綿や多孔体、または繊維束体などの吸蔵体 10a に吸蔵されている。なお、この吸蔵体 10a は液体燃料を吸蔵できるものであれば特に限定されず、後述する燃料供給体 30 と同様の構成のものなどを用いることができる。

【0014】

また、上記燃料貯蔵槽 10 の材質としては、収容される液体燃料に対して保存安定性、耐久性を有するものであれば、特に限定されず、例えば、アルミニウム、ステンレスなどの金属、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリエチレンテレフタレートなどの合成樹脂、ガラスなどが挙げられる。また、燃料貯蔵槽 10 の構造としては、単層構造の他、多層構造などにしてもよいものである。

【0015】

単位セルとなる各燃料電池セル 20 は、図 2 (a) 及び (b) に示すように、微小柱状の炭素多孔体よりなる燃料電極体 21 を有すると共に、その中央部に燃料供給体 30 を貫通する貫通部 22 を有し、上記燃料電極体 21 の外表部に電解質層 23 が構築され、該電解質層 23 の外表部に空気電極層 24 が構築される構造からなっている。なお、各燃料電池セル 20 の一つ当たり、理論上約 1.2 V の起電力を生じる。

【0016】

この燃料電極体 21 を構成する微小柱状の炭素多孔体としては、微小な連通孔を有する多孔質構造体であれば良く、例えば、三次元網目構造若しくは点焼結構造よりなり、アモルファス炭素と炭素粉末とで構成される炭素複合成形体、等方性高密度炭素成形体、炭素繊維抄紙成形体、活性炭素成形体などが挙げられ、好ましくは、燃料電池の燃料極における反応制御が容易かつ反応効率の更なる向上の点で、アモルファス炭素と炭素粉末とからなる微細な連通孔を有する炭素複合成形体が望ましい。

【0017】

この多孔質構造からなる炭素複合体の作製に用いる炭素粉末としては、更なる反応効率の向上の点から、高配向性熱分解黒鉛 (HOPG)、キッシュ黒鉛、天然黒鉛、人造黒鉛、カーボンナノチューブ、フラーレンより選ばれる少なくとも 1 種 (単独または 2 種以上の組合せ) が好ましい。

また、この燃料電極体 21 の外表部には、白金-ルテニウム (Pt-Ru) 触媒、イリジウム-ルテニウム (Ir-Ru) 触媒、白金-スズ (Pt-Sn) 触媒などが当該金属イオンや金属錯体などの金属微粒子前駆体を含んだ溶液を含浸や浸漬処理後還元処理する方法や金属微粒子の電析法などにより形成されている。

【0018】

電解質層 23 としては、プロトン伝導性又は水酸化物イオン伝導性を有するイオン交換膜、例えば、ナフイオン (Nafion、Du pont 社製) を初めとするフッ素系イオン交換膜が挙げられる他、耐熱性、メタノールクロスオーバーの抑制が良好なもの、例えば、無機化合物をプロトン伝導材料とし、ポリマーを膜材料としたコンポジット (複合) 膜、具体的には、無機化合物としてゼオライトを用い、ポリマーとしてスチレン-ブタジエン系ラバーからなる複合膜、炭化水素系グラフト膜などが挙げられる。

また、空気電極層 24 としては、白金 (Pt)、パラジウム (Pd)、ロジウム (Rh) 等を上述の金属微粒子前駆体を含んだ溶液等を用いた方法で担持させた多孔質構造からなる炭素多孔体が挙げられる。

【0019】

前記燃料供給体 30 は、燃料貯蔵槽 10 内に収容される液体燃料を吸蔵する吸蔵体 10a に中継芯 10b を介して接続されている。これらの中継芯 10b 及び燃料供給体 30 は、液体燃料を各単位セル 20 に供給できる浸透構造を有するものであれば、特に限定されず、例えば、フェルト、スポンジ、または、樹脂粒子焼結体、樹脂繊維焼結体などの焼結体等から構成される毛管力を有する多孔体や、天然繊維、獣毛繊維、ポリアセタール系樹脂、アクリル系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリウレタン系樹脂、ポリオレフィン系樹脂、ポリビニル系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリエーテル系樹脂、ポリフェニレン系樹脂などの 1 種又は 2 種以上の組合せからなる繊維束体からなるものが挙げられ、これらの多孔体、繊維束体の気孔率等は各単位セル 20 への供給量に応じて適宜設定されるものである。

【0020】

使用済み燃料貯蔵槽 40 は、燃料供給体 30 の終端に配置されるものであり、上記燃料貯蔵槽 10 と同様の材質で構成されている。この貯蔵槽 40 内に使用済み燃料を吸蔵する多孔体や繊維束体などの吸蔵体 40b が内蔵され、燃料供給体 30 の終端と中継芯 40a を介して接続されている。また、

燃料供給体 30 により供給される液体燃料は、燃料電池セル 20 で反応に供されるものであり、燃料供給量は、燃料消費量に連動しているため、未反応で電池の外に排出される液体燃料は殆ど無く、従来の液体燃料電池のように、燃料出口側の処理系を必要としないが、運転状況により供給過剰時に至った際には、反応に使用されない液体燃料が使用済み燃料貯蔵槽 40 に蓄えられ阻害反応を防ぐことができる構造となっている。

なお、50 は、燃料貯蔵槽 10 と使用済み燃料貯蔵槽 40 を連結するとともに、燃料貯蔵槽 10 から各単位セル 20、20 の個々に燃料供給体 30 を介して直接液体燃料を確実に供給するメッシュ構造などからなる部材である。

【0021】

上記使用済み燃料貯蔵槽 40 には、燃料貯蔵槽 10 へ使用済み燃料を供給し液体燃料として再利用するための燃料再供給路 60 が接続されている。具体的には、使用済み燃料貯蔵槽 40 から残った燃料の成分を再使用するために、使用済み燃料貯蔵槽 40 と燃料貯蔵槽 10 とに接続される燃料再供給路 60 内には、上述の多孔体、繊維束体等からなる燃料供給体 30 と同様の構成となる燃料再供給体 60a が設けられ、該燃料再供給体 60a の一端は使用済み燃料吸蔵体 40b に接続され、他端の滴下部 60b は、燃料貯蔵槽 10 へ導かれる構成となっている。この燃料再供給路 60 は、上記燃料貯蔵槽 10 と同様の材質で構成されている。

【0022】

このように構成される本実施形態の燃料電池 A は、燃料供給体 30 の浸透構造により燃料貯蔵槽 10 内の吸蔵体 10a に吸蔵されている液体燃料を毛管力により燃料電池セル 20、20 内に導入するものである。

本実施形態では、上記使用済み燃料貯蔵槽 40 内に収容される中綿や多孔体、または繊維束体などの吸蔵体 40a が内蔵されており、使用済み燃料が吸蔵されるものである。また、本実施形態では、吸蔵体 40a を燃料供給体 30 の終端に直接接触させて使用済み燃料を直接吸蔵させても問題ないが、燃料供給体 30 と接触する接続部に吸蔵体 40a とは別に中綿や多孔体、または繊維束体などを中継芯 40b を介して接続しており、吸蔵体 40a への使用済み燃料排出路として構成している。

【0023】

更に、本実施形態では、少なくとも燃料貯蔵槽 10 (吸蔵体 10a)、燃料電極体 21 及び／又は燃料電極体 21 に接する燃料供給体 30、使用済み燃料貯蔵槽 40 (吸蔵体 40b)、燃料再供給路 60 (燃料再供給体 60a) の毛管力を、燃料貯蔵槽 10 (吸蔵体 10a) < (中継芯 10b) < 燃料電極体及び／又は燃料電極体に接する燃料供給体 30 < (中継芯 40a) < 使用済み燃料貯蔵槽 40 (吸蔵体 40b) < 燃料再供給路 60 (燃料再供給体 60a) と設定することにより、燃料電池 A がどのような状態 (角度)、逆さ等に放置されても、燃料貯蔵槽 10 から各単位セル 20、20 の個々に直接液体燃料が逆流や途絶を起こすことなく、安定的かつ継続的に燃料を供給し、更には使用済み燃料を燃料貯蔵槽 10 へ再供給することができるものとなる。

【0024】

なお、燃料再供給路 60 に燃料再供給体 60a を設けない場合には、燃料再供給路 60 を毛管力が発生する程度の流路とし、燃料電極体及び／又は燃料電極体に接する燃料供給体 30 < 吸蔵体 40b < 燃料再供給路 60 とすることで、使用済み燃料が逆流を起こすことなく、反応に使用されない液体燃料が貯蔵槽 40 に蓄えられ阻害反応を防ぐことができる、更には、燃料の残分を含む使用済み燃料を、再度、燃料貯蔵槽 10 へ返すことができる。

本実施形態では、上述したとおり、燃料電池の各要素の毛管力は、燃料吸蔵体 10a < 燃料再供給路 60 (燃料再供給体 60a) であるので、燃料吸蔵体 10a と燃料再供給路 60 又は燃料再供給体 60a と接触させると、燃料吸蔵体 10a から燃料再供給路 60 又は燃料再供給体 60a への燃料の流れができてしまうので、使用済み燃料が燃料貯蔵槽 10 へ戻ることが無くなってしまう。従って、燃料吸蔵体 10a と燃料再供給路 60 又は燃料再供給体 60a は接触する構成とはしないことが重要である。本実施形態では、図 1 に示すように、燃料再供給体から滴下部 60b を設け、燃料貯蔵槽 10 内に使用済み燃料を滴下するように構成している。

【0025】

また、この実施形態では、燃料貯蔵槽 10 又は燃料貯蔵槽 10 内の吸蔵体 10a、使用済み燃料貯蔵槽 40 又は使用済み燃料貯蔵槽 40 内の吸蔵体 40a にメタノール等の各液体燃料の液体濃度センサ 70 を取り付けてよいものである。このようにすればメタノール等の液体燃料が所定の出力に発電しなくなる濃度まで燃料の使用が可能であり、その濃度となったことは濃度センサ 70 から表示部 71 を通じ、燃料の使い終わり (終了サイン)

が使用者に容易に分かることができる構成となっている。

更に、前記使用済み燃料貯蔵槽 4 0 及び／又は前記燃料貯蔵槽 1 0、あるいは、前記使用済み燃料貯蔵槽 4 0 と前記燃料貯蔵槽 1 0 との接続部を、接合又は嵌合自在などとすれ、これらは取り外し可能となるので、燃料貯蔵槽 1 0、使用済み燃料貯蔵槽 4 0、及びこれらの接続部の交換が容易にできることとなる。

更にまた、前記使用済み燃料貯蔵槽 4 0 及び／又は前記燃料貯蔵槽 1 0、あるいは、前記使用済み燃料貯蔵槽 4 0 と前記燃料貯蔵槽 1 0 との接続部に、開閉可能な蓋体を設けてもよく、これにより、ごみ等の異物の侵入を防止することができる。

【0026】

また、この実施形態の燃料電池 A では、ポンプやブロワ、燃料気化器、凝縮器等の補器を特に用いることなく、液体燃料を気化せずそのまま円滑に供給及び再供給することができる構造となるため、燃料電池の小型化を図ることが可能となる。

更に、各単位セル 2 0、2 0 への燃料供給には、燃料貯蔵槽 1 0 の端部より中継芯 1 0 b を介して、または、直接接続される浸透構造を有する燃料供給体 3 0 が連結されることにより、複数セルからなる燃料電池の小型化が達成することができるものとなる。

【0027】

図 3 は、本発明の第 2 実施形態の燃料電池 B を示すものである。以下の実施形態において、前記第 1 実施形態と同様の構成及び効果を発揮するものについては、図 1 と同一符号を付してその説明を省略する。

この第 2 実施形態の燃料電池 B は、図 3 に示すように、燃料貯蔵槽 1 0 が液体燃料を直接貯蔵すると共に、燃料貯蔵槽 1 0 の下部にコレクタ体 1 5 を備えて液体燃料を中継芯 1 0 b を貸して燃料供給体 3 0 に供給する点、使用済み燃料貯蔵槽 4 0 内に使用済み燃料が直接収容される点、及び燃料供給体 3 0 と接触する接続部に中綿や多孔体、または繊維束体などからなる中継芯 4 0 b 及び中継芯 4 0 b の周囲にコレクタ体 4 2 を設けている点でのみ、上記第 1 実施形態の燃料電池 A と相違するものである。

このコレクタ体 1 5 は、直液筆記具などにおいて用いられる部材と同様の構成であり、気圧、温度変化等により燃料貯蔵槽 1 0 内に直接収容される液体燃料が燃料供給体 3 0 に過剰に流出するのを防ぐものであり、膨張等により過剰となった液体燃料はコレクタ体のコレクター部 1 5 a、1 5 a … の隙間（羽根体間）などに保持され、気圧、温度変化が元に戻れば燃料貯蔵槽 1 0 内に戻る構造となっている。

【0028】

また、コレクタ体 4 5 も、直液筆記具などにおいて用いられる部材と同様の構成であり、気圧、温度変化等により使用済み燃料貯蔵槽 4 0 内に直接収容される使用済み液体燃料が燃料供給体 3 0 に逆流することを防ぐものであり、膨張等により逆流しそうな使用済み液体燃料はコレクタ体 4 5 のコレクタ部 4 5 a、4 5 a … の隙間などに保持され、気圧、温度変化が元に戻れば使用済み燃料貯蔵槽 4 0 内に戻る構造となっている。

【0029】

これらのコレクタ体 1 5 及び 4 5 の材質としては、収容される液体燃料に対して保存安定性、耐久性を有するものであれば、特に限定されず、アルミニウム、ステンレスなどの金属、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリエチレンテレフタレートなどの合成樹脂などが挙げられる。特に好ましくは、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリエチレンテレフタレートなどの合成樹脂であり、通常の射出成形や複雑な形状を形成可能な光造形技術によって製造することができる。また、前記の合成樹脂などのフィルムをプレス加工するなどして得られる枚葉体を積層させることで、前記射出成形や光造形技術によるコレクタ部の代わりとし、コレクタ体を構成させることもできる。

【0030】

また、これらのコレクタ体 1 5 及び 4 5 の表面エネルギーは、好ましくは、液体燃料、使用済み燃料の表面自由エネルギーよりも高く設定されることが重要であり、これにより液体燃料、使用済み燃料に対するコレクタ体の濡れ性が向上し、液体燃料、使用済み燃料の保持力が向上するものとなる。コレクタ体の表面自由エネルギーの調整には、通常、プ

ラズマ処理、オゾン処理、表面改質剤による処理などにより行うことができる。

【0031】

この第2実施形態の燃料電池Bは、前記第1実施形態の燃料電池Aと同様、中継芯40bの毛管力は、燃料電極体21及び／又は燃料電極体21に接する燃料供給体30<中継芯40bとすることで、使用済み燃料貯蔵槽40から各単位セル20、20の個々に使用済み燃料が逆流を起こすことなく、反応に使用されない液体燃料が貯蔵槽40に蓄えられ阻害反応を防ぐことができる。

更に、この使用済み燃料貯蔵槽40から残った液体燃料の成分を再使用するために、燃料再供給路60を備え、該燃料再供給体60aが内部に設けられており、燃料貯蔵層10に接続されている。本実施形態では、第1実施形態とは相違し、使用済み燃料貯蔵槽40内に使用済み燃料吸蔵体が設けられていないため、燃料再供給体60aや燃料再供給体60の流通路に関して上記燃料供給体30などとの毛細管力について考慮することなく設けることができる。

また、第2実施形態でも、燃料貯蔵槽10又は使用済み燃料貯蔵槽40にメタノール等の液体燃料の濃度センサ70を取り付けてよいものである。このようにすればメタノール等の液体燃料が発電に供しなくなる濃度まで燃料の使用が可能であり、その濃度となったことはセンサから表示部71を通じ、燃料の使い終わりが使用者に容易に分かることができる構成となっている。

【0032】

図4及び図5は、本発明の第3実施形態の燃料電池Cを示すものである。

本実施形態の燃料電池Cは、単位セルが高い導電性を持ちメタノール水溶液などの液体燃料を毛管力で吸い上げるのできる多孔質炭素などを電池支持体とし、その表面に電極／電解質／電極の各層を設けることにより単位セルとした点で、上記第1実施形態の単位セルと相違するものである。この実施形態は、液体燃料を下部から上部へ浸透させる態様のものである。

この実施形態の燃料電池Cは、図5に示すように、電気導電性を有する炭素質多孔体を基材25とし、該基材25の表面上に上記第1実施形態と同様な構成となる電極（燃料極）26／電解質27／電極（空気極）28の各層（MEA）を形成した単位セル（燃料電池セル）29を4つ直列に連結したものである。

【0033】

本実施形態の基材25となる炭素質多孔体は、電気導電性を有すると共に、液体燃料及びガスの浸透媒体、並びに、電池支持体として機能（以下、単に「各特性」という場合がある）するものであり、これらの特性を有するものであれば、その素材は特に限定されるものでないが、例えば、アモルファス炭素、アモルファス炭素と炭素粉末との複合体、等方性高密度炭素成形体、炭素繊維抄紙成形体、活性炭素成形体などが挙げられ、好ましくは、成形性、コスト、所望の物性が容易に得られる点等から、アモルファス炭素、アモルファス炭素と炭素粉末との複合体により構成することが望ましい。

アモルファス炭素は、焼成により5%以上の炭化収率を示すもので、例えば、ポリ塩化ビニル、塩素化塩化ビニル樹脂、ポリアクリロニトリル、ポリビニルアルコール、ポリ塩化ビニル-ポリ酢酸ビニル共重合体等の熱可塑性樹脂、フェノール樹脂、フラン樹脂、イミド樹脂、エポキシ樹脂等の熱硬化性樹脂、セルロース、アラビアガムなどの天然高分子物質等から選ばれる少なくとも1種の原料を焼成することなどにより得られる。

また、炭素粉末としては、例えば、黒鉛、タール状物質を更に乾留して得られるピッチ、炭素繊維、カーボンナノチューブ、メソカーボンマイクロビーズから選ばれる少なくとも1種が挙げられる。

上記アモルファス炭素と炭素粉末との複合体は、全量に対して、粒径を調整したアモルファス炭素原料50～100重量%と炭素粉末0～50重量%とを混合したものを、例えば、不活性雰囲気中で700℃以上で炭素化することなどにより得られる。

【0034】

また、上記各特性を好ましく発揮させるために、基材25となる炭素質多孔体は、平均

孔径 $1\sim 100\mu\text{m}$ 、気孔率 $10\sim 85\%$ であり、かつ、毛管現象により液浸透性（液体燃料を浸透させる機能）及び自己形状を保持するのに十分な強度を有するものであることが望ましい。本実施形態では、平均孔径 $20\mu\text{m}$ 、気孔率 55% 、毛管現象により液浸透性及び自己形状を保持するのに十分な強度を有するものとなっている。

更に好ましくは、平均孔径 $5\sim 70\mu\text{m}$ 、気孔率 $20\sim 70\%$ とし、かつ、毛管現象により液浸透性を有するものであることが特に望ましい。

なお、上記平均孔径（ $1\sim 100\mu\text{m}$ ）、気孔率（ $10\sim 85\%$ ）などが上記各範囲外となる場合は、電気導電性、液体燃料及びガスの浸透媒体、並びに、電池支持体としての機能に不都合を生じることがあり、好ましくない。

また、液浸透性を向上させるためには、更に、得られた基材に、空気酸化、電気化学的な酸化などの処理を施してもよい。

【0035】

上記各特性を有する炭素質多孔体25は、例えば、熱融着可能な上述の樹脂粒子を任意の形状の型に入れ、加熱等により融着し、不活性雰囲気中で焼成することで目的の連続気孔を有する炭素質多孔体を製造することができ、また、結合材である樹脂と炭素粉末である黒鉛などを混合・混練したものを粉碎・造粒し、任意の形状の型に入れプレス成形し、不活性雰囲気中で焼成することで目的の連続気孔を有する炭素質多孔体を製造することができる。

【0036】

本実施形態の基材25となる炭素質多孔体は、図5に示すように、形状は平板状となっており、全体が上記各特性を有するものである。また、基材25は、少なくとも一部に電気導電性を有してもよく、及び／又は、少なくとも一部が炭素質多孔体からなるものである。

本実施形態の単位セル（燃料電池セル）29は、上記各特性を有する基材25表面にPt-Ru/C触媒を塗布した燃料極26、シート状炭素多孔体にPt/C触媒を塗布した空気極28とで電解質膜27を挟持し、ホットプレスにより形成することができる。

この燃料電池セル29は、図5(a)及び(b)に示すように、基材25の上部面にガス抜き及び液体燃料浸透促進のための通気通液孔35、35...を有する通気孔部材36が取り付けられたものである。

このカートリッジ化した燃料電池セル29を用いることにより、燃料電池セル29の連結作業、電氣的接続の効率化、電池（セル）間のスペースの空洞化による空気あるいは液体燃料の対流、拡散速度の増大による電池性能の向上を発揮することができる。

【0037】

本実施形態では、上記燃料電池セル29、29...を保持すると共に、液体燃料貯蔵槽10の吸蔵体10aから燃料供給体30を介して燃料供給ホルダー体32に各セル間が等間隔となるように取り付けられている。この各セル29、29間を $1\sim 20\text{mm}$ 程度の等間隔とすることにより、セル間を対流、拡散する空気あるいは燃料の流れ、濃度が均一化され、各セルの出力が均一化され、電池の出力安定化を発揮することができる、なお、空気更新による、高出力化のため、適宜小型のファンを用いて、空気を強制対流してもよいものである。

この構造の燃料電池Cでは、各燃料電池セル29の炭素質多孔体で液体燃料を浸透させると共に、外表面に形成される電極面を空気に曝す構造であり、図4に示すように、各燃料電池セルの長さ方向を水平にしても、垂直にしても又は斜めにしても、液体燃料の浸透方向が上からでも、下からでも、横からでも浸透させることができるので、液体燃料貯蔵槽10から各燃料電池セル29に直接液体燃料が途絶えることなく安定的に、かつ、継続的に供給することができ、各燃料電池セル29に液体燃料が導入されて発電するものである。

【0038】

上記の単位セルを複数配列することによって、電極面積を拡大し体積当りの電力の出力密度を大きくすることができる。図4に示すように、セル間に隙間を保つように配列する

ことによって、その隙間を空気供給のための流路として利用できるようになる。

本実施形態では、燃料電池セル 2 9 の上端面となる通気通液孔 3 5, 3 5 … に、使用済み燃料を吸蔵する燃料吸蔵体からなる一時的な使用済み燃料貯蔵槽 4 2 と燃料貯蔵槽 1 0 が燃料再供給体 6 0 a を介して接続された形となっており、排燃料は直接燃料吸蔵体 1 0 a に戻されるようになっている。

【0039】

この実施形態の燃料電池 C は、第 1 実施形態の燃料電池 A と同様に、燃料電池各要素の毛管力は、燃料吸蔵体 1 0 a < 燃料再供給路 6 0 (燃料再供給体 6 0 a) であるので、燃料吸蔵体 1 0 a と燃料再供給路 6 0 又は燃料再供給体 6 0 a と接触させると、燃料吸蔵体 1 0 a から燃料再供給路 6 0 又は燃料再供給体 6 0 a への燃料の流れができてしまうので、使用済み燃料が燃料貯蔵槽 1 0 へ戻ることが無くなってしまふ。従って、燃料吸蔵体 1 0 a と燃料再供給路 6 0 又は燃料再供給体 6 0 a は接触する構成とはしないことが重要であり、本実施形態では燃料再供給体 6 0 a から滴下体 6 0 b を設け、燃料貯蔵体 1 0 内に使用済み燃料を滴下させ吸蔵体 1 0 a に吸蔵させるように構成している。

【0040】

このように構成される本実施形態の燃料電池 C では、電気導電性を有する炭素質多孔体を基材 2 5 とし、該基材 2 5 の表面に電極 2 6 / 電解質 2 7 / 電極 2 8 の各層を形成した単位セル 2 9 をホルダー体 3 2 に取り付け、基材 2 5 に液体燃料を浸透させると共に、基材 2 5 の外表面に形成される電極面を空気に曝す構造となり、上記基材 2 5 を電極・集電体、液体燃料又はガスの浸透媒体、及び電池支持体として共有するものであり、燃料貯蔵槽 1 0 の液体燃料を浸透作用により燃料電池セル 2 9 に導入されて発電するものである。

本実施形態では、基材 2 5 が上記特性、すなわち、電気導電性を有すると共に、液体燃料及びガスの浸透媒体、並びに、電池支持体として機能するので、液体燃料は外部に漏出することがなく、燃料電池 C を縦型配置、横型配置にされても、燃料貯蔵槽 1 0 から単位セル 2 9 に直接液体燃料が途絶えることなく安定的に、かつ、継続的に供給することができるものとなる。

【0041】

この実施形態の燃料電池 C では、ポンプやブロワ、燃料気化器、凝縮器等の補器を特に用いることなく電気導電性を有する炭素質多孔体となる基材を電極・集電体、液体燃料又はガスの浸透媒体、及び電池支持体として共有することにより、セパレータを不要とすることができ、この不要となった空間をガス又は液体燃料の対流・拡散の場に利用することで、液体燃料を気化せずそのまま円滑に供給することができる構造となるため、燃料電池の小型化を図ることが可能となり、しかも、簡便に使用済み燃料の再利用を可能とする燃料電池が得られるものとなる。

【0042】

また、この実施形態では、多孔質支持体となる基材 2 5 の表面の大部分を電極として利用することができ、また、基材 2 5 の多孔質炭素は燃料極の集電体をも兼ねるのでその端部で比較的容易にセル同士の電氣的接続を行うことができる。

更に、この実施形態でも、燃料貯蔵槽 1 0 又は使用済み燃料貯蔵槽 4 2 にメタノール等の液体燃料の濃度センサ 7 0 を取り付けてよいものである。このようにすればメタノール等の液体燃料が発電に供しなくなる濃度まで燃料の使用が可能であり、その濃度となったことはセンサから表示部 7 1 を通じ使用者に終了サインとして伝えることができる。

【0043】

本発明の燃料電池は、上記各実施形態に限定されるものではなく、本発明の技術思想の範囲内で種々変更することができるものである。

例えば、上記第 1 実施形態で燃料電池セル 2 0 は円柱状のものをういたが、角柱状、板状の他の形状のものであってもよく、また、燃料供給体 3 0 との接続は直列接続のほか、並列接続であつてもよい。

更に、上記実施形態では、直接メタノール型の燃料電池として説明したが、燃料電極体の外表部に電解質層を構築し、該電解質層の外表部に空気電極層を構築することで形成

される単位セルが複数連結されると共に、該各単位セルには液体燃料を貯蔵する燃料貯蔵槽に接続される浸透構造を有する燃料供給体又は燃料電極体が連結されて液体燃料が供給され、燃料供給体の終端は、使用済み燃料貯蔵槽に接続される燃料電池であって、前記使用済み燃料貯蔵槽と前記燃料貯蔵槽とが接続され、使用済み燃料が前記燃料貯蔵槽に供給されて液体燃料として再利用できる構成としてなるものであれば、本発明は上記直接メタノール型の燃料電池に限定されるものではなく、改質型を含む高分子改質膜型の燃料電池にも好適に適用することができるものである。

【図面の簡単な説明】

【0044】

【図1】本発明の第1実施形態の燃料電池を縦断面態様で示す図面である。

【図2】(a)は図1の燃料電池に用いる単位セルの斜視図、(b)はその部分縦断面図である。

【図3】本発明の第2実施形態の燃料電池を縦断面態様で示す図面である。

【図4】本発明の第3実施形態の燃料電池を斜視図態様で示す概略図面である。

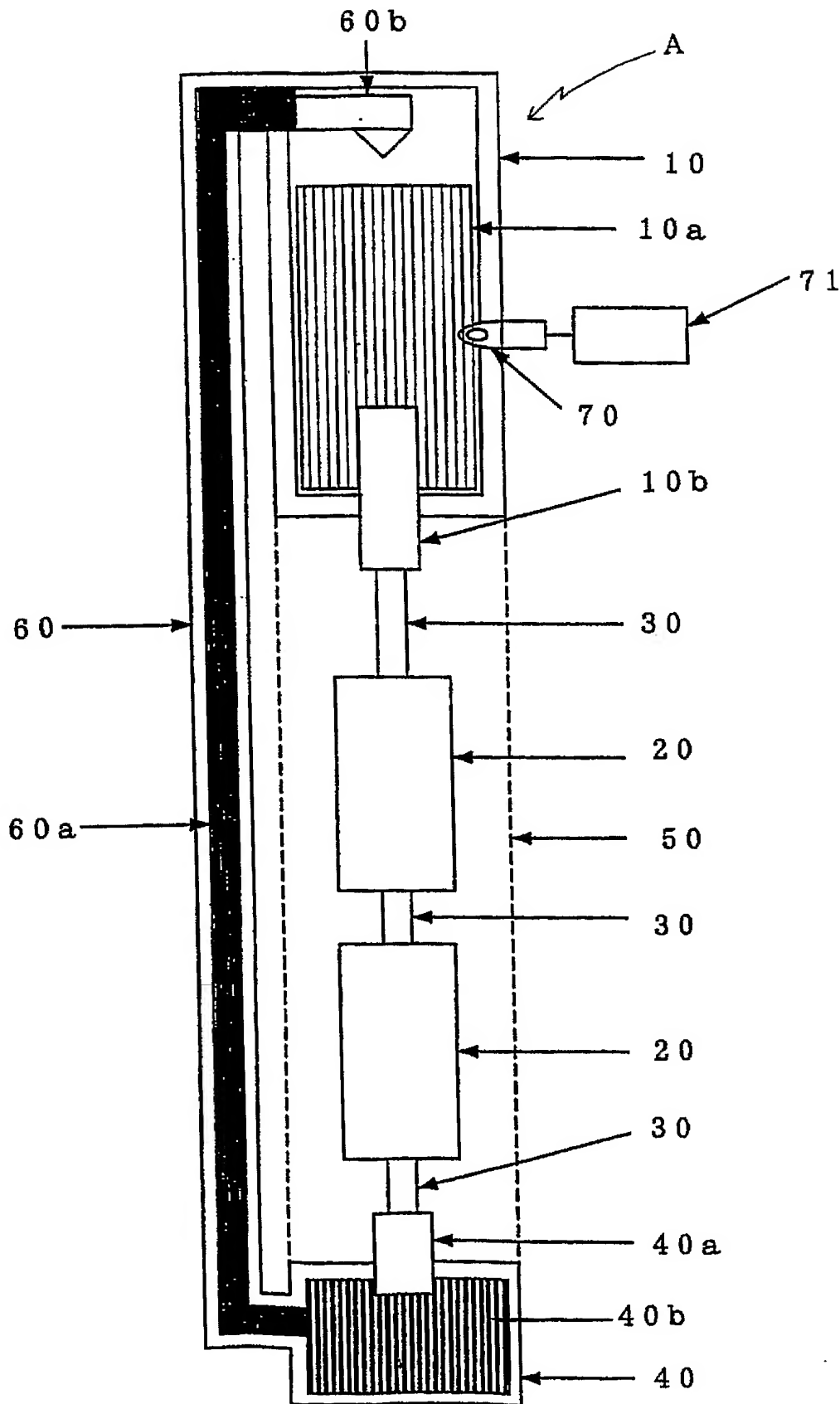
【図5】(a)は図4の燃料電池に用いる単位セルの斜視図、(b)は、単位セルの部分縦断面図である。

【符号の説明】

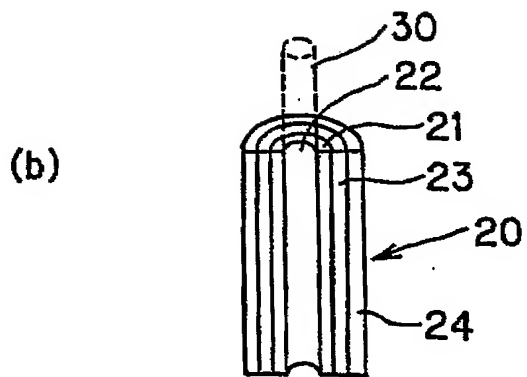
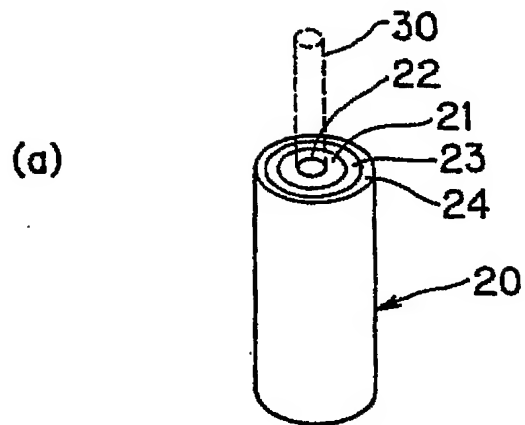
【0045】

- A 燃料電池
- 10 燃料貯蔵槽
- 20 燃料電池セル (単位セル)
- 30 燃料供給体
- 40 使用済み燃料貯蔵槽
- 60 燃料再供給路
- 70 液体燃料濃度センサ

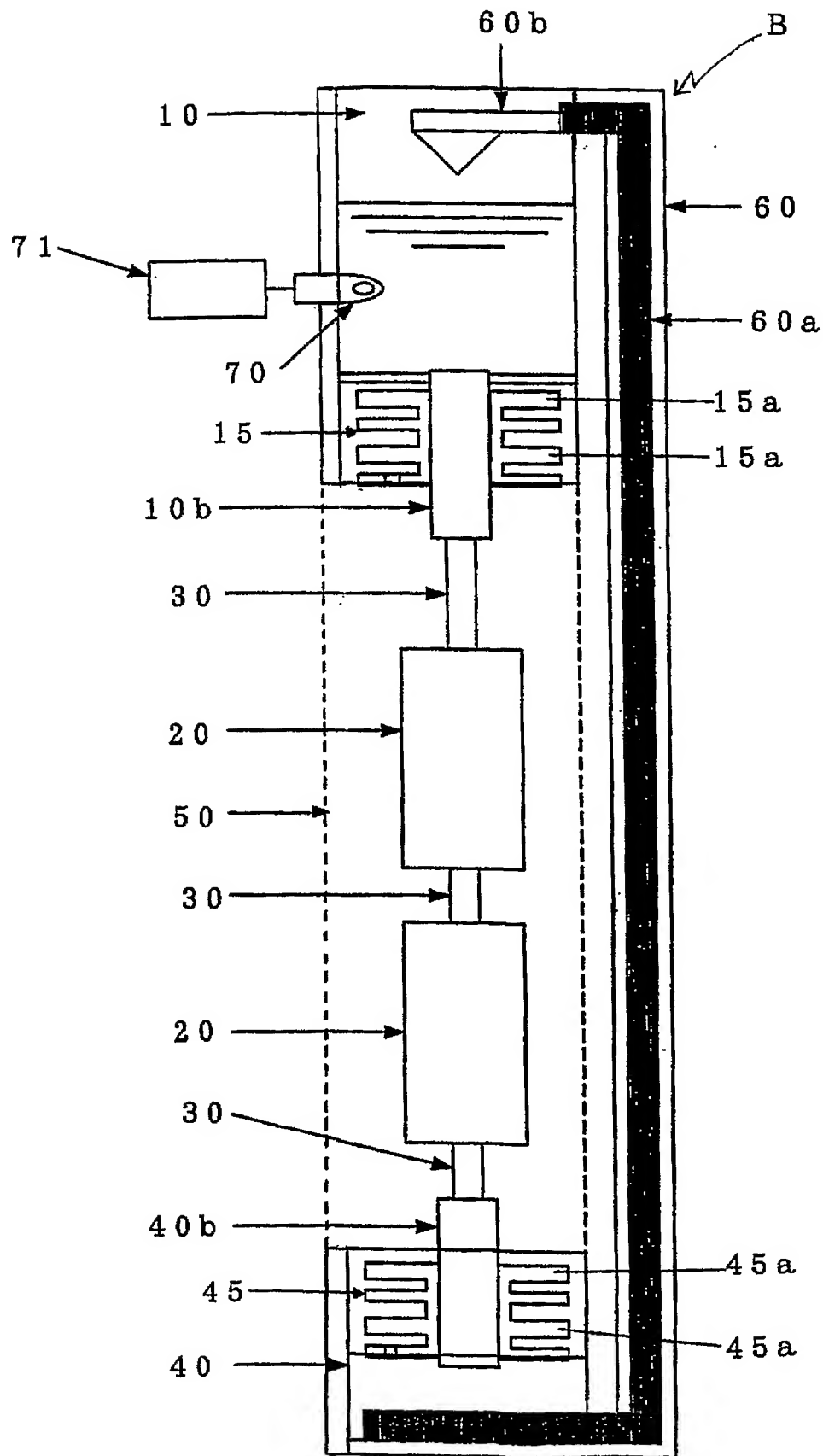
【書類名】 図面
【図 1】



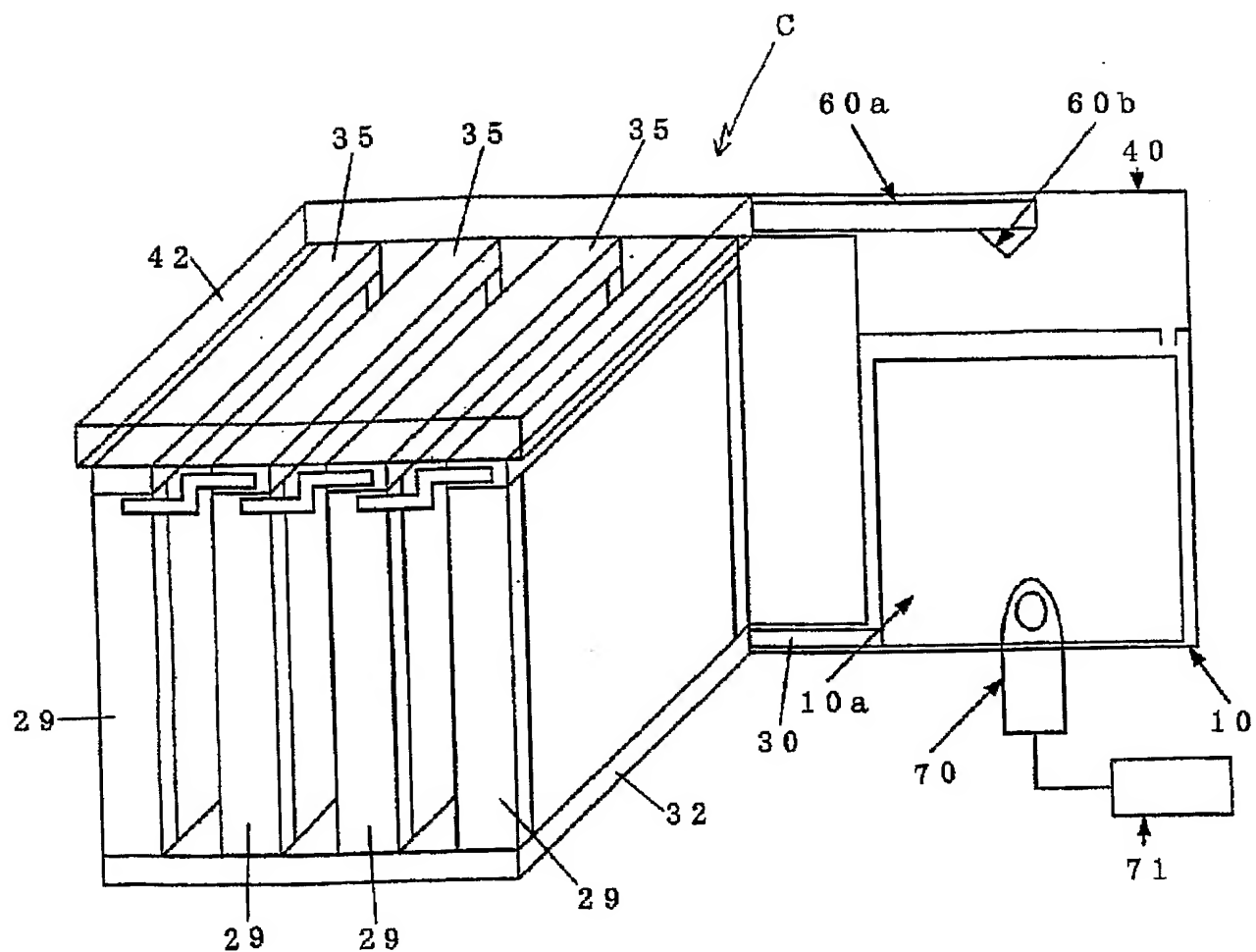
【図 2】



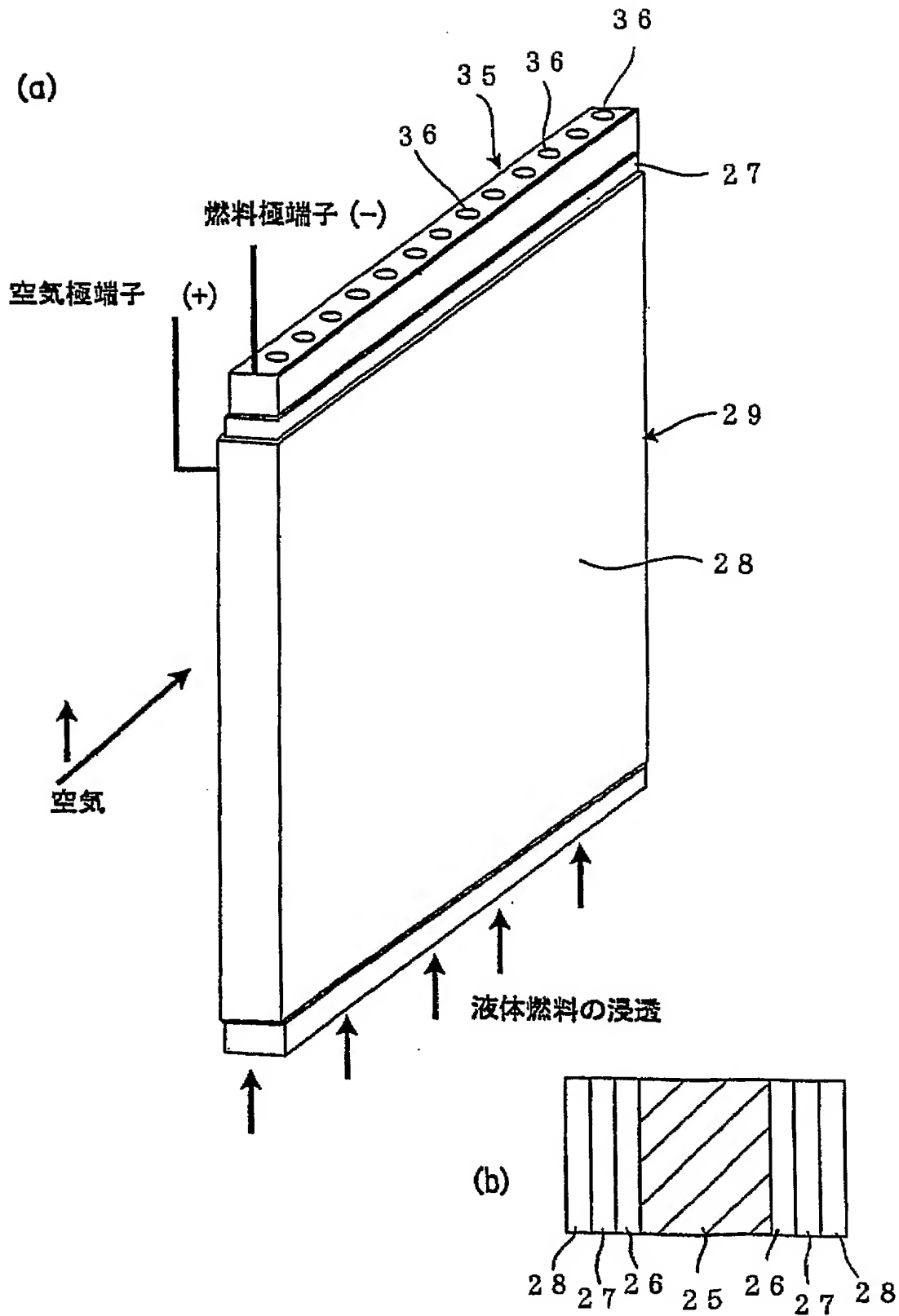
【図 3】



【図 4】



【図 5】



【書類名】 要約書**【要約】**

【課題】 燃料極に直接液体燃料を安定的に供給し、簡便に使用済み燃料の再利用を可能にし、燃料の使い終わりが使用者に容易に分かることができる携帯帯電話、ノート型パソコン、デジタルカメラ、電子手帳及びPDAなどの携帯用電子機器の電源として用いられるのに好適な小型の直接メタノール型などの燃料電池を提供する。

【解決手段】 燃料電池の単位セル20が複数連結されると共に、該各単位セル20には液体燃料を貯蔵する燃料貯蔵槽10に接続される浸透構造を有する燃料供給体30が連結されて液体燃料が供給され、燃料供給体30の終端は、使用済み燃料貯蔵槽40に接続される燃料電池であって、前記使用済み燃料貯蔵槽40と前記燃料貯蔵槽10とが接続され、使用済み燃料が前記燃料貯蔵槽10に供給されて液体燃料として再利用できる構成としてなることを特徴とする燃料電池A。

【選択図】 図1

特願 2 0 0 4 - 3 4 1 5 7 6

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 5 9 5 7]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 1 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都品川区東大井 5 丁目 2 3 番 3 7 号

氏 名

三菱鉛筆株式会社